

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

⑬日本国特許庁  
公開特許公報

⑪特許出願公開  
昭53—64753

⑨Int. Cl.<sup>2</sup>  
H 01 G 4/18  
H 01 B 3/42

識別記号

⑫日本分類 庁内整理番号  
59 E 101.32 6466—57  
62 C 53 6790—57  
59 E 102.2 6466—57

⑬公開 昭和53年(1978)6月9日

発明の数 1  
審査請求 未請求

(全 9 頁)

⑭コンデンサー誘電体用二軸配向ポリエステルフィルム

⑯特 願 昭51—139480

⑰出 願 昭51(1976)11月22日

⑱発 明 者 中條隆雄

相模原市相模台 6—2—2

⑲発 明 者 塩崎茂

町田市真光寺町791—5

同

三石幸夫

町田市玉川学園 4—16—34

⑳出 願 人 帝人株式会社

大阪市東区南本町 1 丁目11番地

㉑代 理 人 弁理士 前田純博

明 細 書

1. 発明の名称

コンデンサー誘電体用二軸配向ポリエステルフィルム

2. 特許請求の範囲

コンデンサー誘電体用二軸配向ポリエステルフィルムにおいて、その縦方向の $E$ — $S$ 値が $1.5 \text{ kg/cm}^2$ 以上であり、フィルム表面の、高さ $0.5 \mu$ 以上の突起の数が $5000 \text{ 個/cm}^2$ 以上で、コンデンサー素子のつぶれ荷重指数 $\gamma$ が、式

$$\gamma \leq 0.0135\beta - 0.004\pi + 0.6$$

(但し、 $\gamma$ はつぶれ荷重指数(単位、 $\text{kg}$ )、

$\pi$ はフィルムの厚さ(単位、 $\mu$ ))

を満足することを特徴とする

コンデンサー誘電体用二軸配向ポリエステルフィルム。

3. 発明の詳細な説明

本発明はコンデンサー誘電体用二軸延伸ポリエステルフィルムに関する。更に詳しくは、縦方向の強度が大で、優れた表面状態と電気特性

とを兼ねそなえたコンデンサー誘電体用フィルムを提供しようとするものである。

二軸延伸ポリエステルフィルムは、その機械的強靱性、優れた電気的特性及び優れた耐熱性などから、紙や他の高分子フィルムにかわつてコンデンサーの誘電体として近時ますます常用されている。

コンデンサーの誘電体として使用されるときの特徴は、① $5 \sim 10 \mu$ 厚みの金属性電極箔(主にアルミニウムが用いられる。)と一般に $4 \sim 30 \mu$ の厚みのフィルムを重ねて巻きとつて素子を作る場合(箔巻きコンデンサー素子と呼ぶ)と、②フィルムに直接アルミニウムや亜鉛を高真空蒸着して素子に巻きとる様式(蒸着フィルムコンデンサー素子と呼ぶ)とがある。蒸着フィルムは、特にコンデンサーの小型化の為に採用されているが、この蒸着フィルムコンデンサー製造工程で要求される重要な要件の一つは蒸着加工時におけるフィルム縦方向の強度が大きいことであり、また、一つは素子の巻回性とつづ

れ性が良好なことである。即ち、蒸着加工時においてフィルムを蒸着装置に掛けた場合の抗張力が重要な要素となり、縦方向の強度が弱いとフィルムの破断破壊、伸びが起り、歩留が低下することから、縦方向の強度や $P-S$ 値が大であることが生産上要求される。特に、蒸着装置の速度やテンションが増加したり、フィルムの薄物化が進むにつれて、縦方向の強度や $P-S$ 値が大であることが非常に重要となる。特に縦方向の $P-S$ 値が大きくないと、高速、高テンションでの蒸着加工に耐し、弾性変形限界をこえて永久変形し、結果として伸びを生ずるので好ましくない。蒸着後のフィルムは巻回した(巻回工程)後、芯から抜きとり、プレスして素子を偏平につぶし(プレス工程と呼ぶ)、リード線をつけるためにハンダ付ができるように、偏平にした素子の両端面に金属粒子を吹きつける工程(メタリコン工程と呼ぶ)を経なければならぬ。箔巻きコンデンサー素子でも、プレス工程やメタリコン工程を経るものもあるので、巻

回性とつぶれ性が良好であることが要求される。巻回性が良好とは、巻回機にてフィルムをコンデンサー素子に巻取る際、フィルムの蛇行や端面ずれを生じないことを意味し、つぶれ性が良好とは、プレスが均一にでき、且つ余り大きな荷重をかけることなく偏平にでき、しかもプレス後の素子の端面部にメタリコン工程で金属粒子の入りこむ隙間のないことである。図1にはプレス前の素子、図2にプレス後素子端面部空隙のあるもの、また図3にはプレス後素子端面部が横一文字の形状でフィルム層間に空隙のない良好な素子の形状を示す。

巻回性が悪かつたり、つぶれ性が悪く端面に空隙があると、メタリコン粒子の侵入により、絶縁抵抗や誘電正接の劣化がおこり、製品は不良品となる。

巻回性やつぶれ性を改良するためには、誘電体として用いられているフィルムの滑り性をよくすることが必須要件であつて、この要件をみたすために、高分子中に無機の微細な粒子を添

加したり、高分子中に不溶性の触媒残渣を形成せしめたりして、フィルム面に凹凸に付与することにより、ASTM-D-1894に従つて測定(あるいはフィルムと金属との)を低下せたり、される摩擦係数(フィルムとフィルムとの、JIS 22-B-00601に規定されている触針式表面粗さ測定機によつて測定される最大高さ、10点平均高さ、中心線平均粗さ等で表わされる粗面化をはかることが行なわれている。しかし、かかる改良によつても、実際にコンデンサー用としたときの取扱ひ作業性や製品品質の改良とは一致しないという問題がある。例えば、等しい摩擦係数を示すフィルム、あるいは等しい表面粗さを示すフィルムであつても、粒子径の大きい無機微細粒子を含有せしめたものと粒子径の小さい無機微細粒子を含有せしめたものでは、絶縁破壊電圧の著しく低下したものを生じたり、取扱い作業性が異なつたり(巻回性やつぶれ性が不良のものを生じたり)し、不良品を屢々生ずる。

本発明者は、このような問題を解決すべく鋭

意研究の結果、フィルムの縦方向の $P-S$ 値が $1.3 \text{ kg/cm}^2$ 以上であり、フィルム表面の、高さ $0.5 \mu$ 以上の突起の数が $5000 \text{ 個/cm}^2$ 以上で、コンデンサー素子のつぶれ荷重指数が下記式で表わされる値以下であるような二軸配向ポリエステルフィルムを用いるならば、このような欠点が改良されることを見出し、本発明に到達した。

即ち、本発明は、コンデンサー誘電体用二軸配向ポリエステルフィルムにおいて、その縦方向の $P-S$ 値が $1.3 \text{ kg/cm}^2$ 以上であり、フィルム表面の、高さ $0.5 \mu$ 以上の突起の数が $5000 \text{ 個/cm}^2$ 以上で、コンデンサー素子のつぶれ荷重指数 $y$ が、式

$$y \leq 0.0135Z - 0.004E + 0.6$$

(但し、 $y$ はつぶれ荷重指数(単位、 $\text{kg}$ )、

$Z$ はフィルムの厚さ(単位、 $\mu$ )

を満足することを特徴とするコンデンサー誘電体用二軸配向ポリエステルフィルムである。

本発明にいうポリエステルとは線状芳香族ポ

リエステル（例えばポリエチレンテレフタレート、ポリテトラメチレンテレフタレート、ポリエチレン-2,6-ナフタレンジカルボキシレート等）を主成分とする。これらはホモポリマーであっても、繰り返し構造単位の数の15%以下の範囲で他の成分が共重合されたものでよい。

本発明のポリエステルフィルムは、その縦方向（即ち、長手方向）の $P$ -5値が $1.3 \text{ kg/cm}^2$ 以上のものである。それは、該 $P$ -5値が $1.3 \text{ kg/cm}^2$ 以上のものが、蒸着加工の際に十分な強度を保ち、伸びも充分小さく、蒸着加工性がすぐれるからである。或 $P$ -5値が $1.3 \text{ kg/cm}^2$ 未満のものは、蒸着加工の際に実質的な伸びが生じ易く、甚しい時には破損や破断が生じるので好ましくない。一方、フィルムの横方向に関しては縦方向のような高い $P$ -5値は要求されない。しかも、縦方向の $P$ -5値を $1.3 \text{ kg/cm}^2$ 以上にしながら横方向もそれに劣らぬ $P$ -5値が得られるように配向せしめると鋭くなる傾向が生ずるので、横方向の $P$ -5値は $1.3 \text{ kg/cm}^2$ 以下にとどめるのが好ましい。縦方向の $P$ -5値は $1.4 \text{ kg/cm}^2$ 以上、特に $1.5 \text{ kg/cm}^2$ 以上にするのが好ましい。縦方向の $P$ -5値の上限は特に限定されないが、通常 $2.8 \text{ kg/cm}^2$ 以下である。また、横方向の $P$ -5値は $1.2 \text{ kg/cm}^2$ 以下、特に $1.1 \text{ kg/cm}^2$ 以下が好ましい。横方向の $P$ -5値は、特に限定されないが通常 $0.8 \text{ kg/cm}^2$ 以上である。この時のフィルムの屈折率は製膜条件に依存し、特に限定されないが、縦方向の屈折率 $n_z$ は $1.670$ 以下、好ましくは $1.673$ 以下、さらに好ましくは $1.676$ 以下、横方向の屈折率 $n_y$ は通常 $1.729$ 以下、好ましくは $1.673$ 以下、さらに好ましくは $1.676$ 以下である。また横方向の屈折率 $n_y$ は $1.650$ 以下、好ましくは $1.648$ 以下、さらに好ましくは $1.645$ 以下にするのがよい。この時両者の差（ $n_z - n_y$ ）を $0.025$ 以上、好ましくは $0.032$ 以上、さらに好ましくは $0.038$ 以上にするのがよい。

本発明のポリエステルフィルムは、そのフィルムの表面の突起に関して、高さ $0.5 \mu$ 以上の突起の数が $5000$ 個/ $\text{cm}^2$ 以上であることが必要である。高さ $0.5 \mu$ 以上の突起の数が $5000$ 個/ $\text{cm}^2$ 未満であると、コンデンサー素子の取扱い易さ（例えば巻回性、つぶれ性）がよくないので好ましくない。高さ $0.5 \mu$ 以上の突起の数は $1$ 万個/ $\text{cm}^2$ 以上、特に $1$ 万5千個/ $\text{cm}^2$ 以上が好ましい。通常は、該突起の数は $10$ 万個/ $\text{cm}^2$ 以下である。

該突起の中に著しく高い突起が数多く存在すると絶縁破壊電圧、特にその長時間寿命特性が低下する場合もあるので、なるべく、高さ $4 \mu$ をこえる突起の数が $10$ 個/ $\text{cm}^2$ 以下、とりわけ $2$ 個/ $\text{cm}^2$ 以下であることが好ましい。

特に素子の巻取、偏平化において、同一フィルムで巻取強力を変えて素子の巻取りを行なうと、高強力で巻くほど素子の端面が損うので好ましいが、偏平化に大きな力を要し、かつ偏平化後の巻取部に隙間ができやすい。低強力で巻いたものは、偏平化は容易であるが、素子巻取時にフィルムの蛇行が起り易く、端面が不揃いになる傾向がある。また、同一の強力で素子を巻く場合を比較すると、滑り性があまりよくないフィルムでは、素子の端面が割つてきれいに巻き易いが、偏平化に大きな力を要し、かつ巻取部にも隙間ができやすい。また滑りすぎるフィルムは偏平化は容易であつても、素子の端面が不揃いになりやすい傾向がある。この巻取性及びつぶれ性という一見相反する要求を、フィルム表面の高さ $0.5 \mu$ 以上の突起の数を $5000$ 個/ $\text{cm}^2$ 以上にすることにより、両立せしめることができるのである。巻取り速度を大にし、巻取、偏平化作業を効率よく行なうためには高さ $0.5 \mu$ 以上の突起が $10000$ 個/ $\text{cm}^2$ 以上であることが好ましい。特に該突起が $15000$ 個/ $\text{cm}^2$ 以上あるものは、自動巻回機等を用いた高速巻取で素子を効率よく作るのに適している。

本発明のポリエステルフィルムは、コンデンサー素子のつぶれ荷重指数 $\gamma$ が式

$$\gamma \leq 0.0135\sigma - 0.004\sigma + 0.6 \quad \cdots (1)$$

（但し、 $\gamma$ はつぶれ荷重指数（単位、 $\text{kg}$ ）、 $\sigma$ はフィルムの厚さ（単位、 $\mu$ ））を満足するものである。 $\gamma$ が式(1)を満足しない

本発明のポリエステルフィルムは、コンデンサー素子のつぶれ荷重指数 $\gamma$ が式

$$\gamma \leq 0.0135\sigma - 0.004\sigma + 0.6 \quad \cdots (1)$$

（但し、 $\gamma$ はつぶれ荷重指数（単位、 $\text{kg}$ ）、 $\sigma$ はフィルムの厚さ（単位、 $\mu$ ））

を満足するものである。 $\gamma$ が式(1)を満足しない

と、偏平化の際に素子端面部に空隙をなくするには、非常に大きな圧力でプレスする必要がある。装置を大型化、大容量化しなければならず作業効率が低下するのみならず、無理な偏平化により素子端面が不均一な形状になり、それと共に素子の特性が劣化して不良率を増大させるので好ましくない。本発明においては該つぶれ荷重指数が式

$$\gamma \leq 0.0083\alpha - 0.0082\pi + 0.3 \quad \dots\dots(2)$$

特に、式

$$\gamma \leq 0.0031\alpha + 0.037\pi + 0.3 \quad \dots\dots(4)$$

(但し、これらの式において $\gamma$ および $\pi$ は式(1)の場合に同じ)

を満足するようにすると、さらに好ましい結果が得られる。一方、つぶれ荷重指数が余り小さすぎるとコンデンサの形状が崩れ易くなる傾向があるので、つぶれ荷重指数が0.1 kg以上であるのが好ましい。

本発明には、通常、厚さ2〜3.6 μmのフィルム、特に厚さ2〜1.2 μmのフィルムが好ましく用い

られる。

本発明のポリエステルフィルムは、例えば以下に述べるような方法により製造できる。

少なくとも一種の芳香族二官能性カルボン酸の低級アルキルエステルおよび少なくとも一種のグリコールをエステル交換反応せしめ、次いでエステル交換反応生成物を重縮合反応せしめてポリエステルを製造する方法において、該エステル交換反応を下記式(4)〜(7)を同時に満足する量のカルシウム化合物およびリチウム化合物(但しリン酸リチウムを除く)を存在せしめて行なう。

$$0.03 \leq \text{Ca} \leq 0.50 \quad \dots\dots(4)$$

$$0.10 \leq \text{Li} \leq 0.80 \quad \dots\dots(5)$$

$$0.30 \leq 0.5 \text{Ca} + \text{Li} \leq 1.00 \quad \dots\dots(6)$$

それと共に、該ポリエステルの重縮合反応の完了する以前に下記一般式(8)



{但し、Rはアルキル基、アリール基またはヒ}

$$\left[ \begin{array}{l} \text{ドコシアルキル基, } n \text{ は } 0 \text{ または } 1, \text{ } \angle \text{ は } \\ 0 \sim 2 \text{ の整数, } m \text{ は } 1 \sim 3 \text{ の整数で, } \angle + m \\ = 3 \end{array} \right]$$

で表わされるリン化合物を下記式(9)

$$0.10 \leq \frac{P}{0.5 \text{Ca} + \text{Li}} \leq 0.55 \quad \dots\dots(9)$$

を満足するように添加する。

$$\left[ \begin{array}{l} \text{但し、前記式(4)〜(7)において、Ca, Li, およ} \\ \text{び P はそれぞれカルシウム分、リチウム分ま} \\ \text{たはリン分のジカルボン酸成分に対するモル} \\ \text{比を表わす。} \end{array} \right]$$

このほかに、ポリエステルの重縮合反応の完了する以前にリン酸リチウムを生産ポリエステルに対し0.01〜0.5重量%含有するように添加する。

エステル交換反応の際に存在せしめるカルシウム化合物やリン化合物はエステル交換触媒を兼ねさせる。したがって、使用するカルシウム化合物はエステル交換反応能を有するものであれば、どのようなカルシウム化合物でもよく、

好ましく用いられるものとして、フロビオン酸、酪酸等のとき脂肪族カルボン酸の塩、安息香酸、p-メチル安息香酸、ナフトエ酸等のとき芳香族カルボン酸の塩、メチルアルコール、エチルアルコール、プロピルアルコール、ブチルアルコール等のとき1価アルコールやエタレングリコール、プロピレングリコール等のとき多価アルコールのアルコラート、塩化物等が例示される。

同様にリチウム化合物もエステル交換触媒能を有するものであれば、どのようなリチウム化合物でもよく、好ましく用いられるものとして前記カルシウム化合物に対応するリチウム化合物すなわち脂肪族カルボン酸の塩、芳香族カルボン酸の塩、アルコール、塩化物、水素化合物等が例示される。なおリン酸リチウムはほとんどエステル交換触媒能がないので、ここにいうリチウム化合物からは除外する。

前記式(8)で表わされるリン化合物は、Rが炭素数1〜4のアルキル基、炭素数5〜10のア

リン基、または炭素数2～10のヒドロキシアルキル基であるものが好ましい。縮リン化合物の添加時期は重合反応の完結する以前であれば特に制限はないが、エステル交換反応の完結する以前に添加すると、エステル交換反応能を低下させる傾向があるので、エステル交換反応が実質上完了した段階で添加し、しかる後に重合反応させるのが好ましい。

リン酸リチウム重合反応の完結する以前であれば、任意の時期に添加できる。しかし、平均粒子径を1μ以下にして、エステル交換の際に添加する原料グリコール中に分散させておくのが便利である。

重合反応には、従来公知の触媒や方法を採用すればよい。

このような重合方法で得られたポリエステル中には、リン酸リチウム、カルシウム化合物、リチウム化合物、リン化合物および該ポリエステルのも構成成分であるオリゴマーとからなる析出粒子を含有し、これによつて前記のごとき所

一層の表面特性を有するフィルムが得られると考えられる。

また、従来公知の非析出型触媒及び不活性無機化合物を添加する方法を採用することもできる。例えば、二酸化ケイ素、アルミナ、及び $810_2$ 分を30重量%以上含有するケイ酸塩より成る群から選ばれた平均粒径が0.01～1μの粒子を0.01～0.5重量%、並びに平均粒径が0.5～1.5μである炭酸カルシウム粒子を0.1～0.5重量%含有せしめたポリエステル、或は二酸化ケイ素、アルミナ、及び $810_2$ 分を30重量%以上含有するケイ酸塩より成る群から選ばれた平均粒径が0.01～2μの粒子を0.01～0.5重量%、並びに平均粒径が0.5～1.5μである磷酸リチウム粒子を0.02～0.5重量%含有せしめたポリエステルから製膜してもよい。

しかしながら、本発明でフィルムに用いるポリエステルは、このような方法で得られたもののみには限られないことは言うまでもない。

本発明のフィルムは、原料ポリエステルを常

法により溶融押出して未延伸フィルムとなし、該未延伸フィルムを、一軸延伸した後の「フィルム面内における延伸方向と垂直の方向」(例えば縦延伸後であれば横方向)の屈折率 $n_{90}$ が1.560以下となるように、一軸方向(例えば縦方向)に延伸倍率2.5～3.0倍、好ましくは1.0～4.5倍に延伸し(該延伸温度を高めると $n_{90}$ が増大する傾向があるので該延伸温度の上限は一軸延伸後の $n_{90}$ が1.560になる温度である。また、延伸温度の下限は低温延伸限界温度(即ち、延伸温度が低すぎるときに生ずる未延伸部と高倍率に延伸された部分とが混在するような著しく大きな厚さ差を生起しない下限となる温度)である。 $n_{90}$ が1.560になる延伸温度はポリマーの種類や延伸倍率により若干変化するが、低温延伸限界温度より約3～10℃高い温度になるのが通例である。)、次いで90～80℃で前記延伸方向と直角方向(前記延伸が縦方向であるならば、今後は横方向)に延伸倍率2.5～3.0倍、好ましくは1.0～4.5倍に

延伸し、更に183～215℃で9～100秒程度熱固定すると得られる。

本発明のフィルムは電気特性が優れるのみならず、コンデンサー誘電体製造の際の取扱作業性、蒸着加工性にも優れるのでコンデンサー誘電体用(例えば箔巻きコンデンサー素子用、蒸着フィルムコンデンサー素子用等)に好する。取扱作業性の要求の厳しい蒸着フィルムコンデンサー素子用としても、他の材料にくらべて格段と優れている。

以下に、本発明における主な特性の測定法を示す。

#### (1) $P-T$ 値

東洋ポールドウィン社製テンシロンUTM-8-500型を用い、室温、相対湿度65%において、長さ10cm、巾1mmの原フィルムを100%/mmで引張り、荷重-伸びチャートを作成し、5%伸長時の荷重を算出し、これを原フィルムの断面積で除し、1mm<sup>2</sup>当りに換算して表わしたもので、フィルム長手方向

に引張つた場合のものを縦方向のアーウ値と言ひ、フィルム幅方向に引張つた場合のものを横方向のアーウ値と言ふ。

#### (2) つぶれ荷重指数

20mm幅にスリットしたフィルムを外径4mmの巻芯に、巻張力140.9、巻取速度30mm/secで4mの長さを巻回した素子を作り、これを例えば島津製作所製オートグラフにより、3mm/分の速度で圧縮し、応力-歪曲線から降伏荷重を讀みとり、これをもつてつぶれ荷重指数とする。応力-歪曲線が降伏点を示さず応力が歪の増加とともになつて漸増する場合には、素子を2mm圧縮した時の応力をもつて、つぶれ荷重指数とする。

#### (3) フィルム面の突起の高さと突起の数

高さの測定は可視の単色光による多重反射干渉式の表面あらさ測定器を用いる。フィルム表面にはアルミニウム等の反射率の高い金属を薄く蒸着してから測定する。顕微鏡で測定するので、測定視野が狭いので、測定すべ

きフィルム両面につき、測定視野をランダムに選び、0.5μ以上の高さの突起の数については合計約0.1cm<sup>2</sup>の部分測定し、これを1cm<sup>2</sup>当りに換算する。

高さ4μをこえる突起の数を測定する場合、かかる突起の数は非常に少いので広い面積(約1000cm<sup>2</sup>)を有するフィルムを、互いにその方向をクロスさせた2枚の偏光板の間にフィルムを挟み、肉眼判定により大きな異物の位置を検知し(異物の近傍が他の部分と光り方が異なるので検知できる)、その部分について、高さ0.5μ以上の突起の場合と同様に可視単色光による多重反射干渉式の表面あらさ測定器による高さの測定を行ない、その中で高さ4μをこえる突起の数を数え、これを1cm<sup>2</sup>当りに換算する。

#### (4) 絶縁破壊電圧及び絶縁破壊異常率

絶縁破壊電圧はJIS-C-2318に示される方法で測定した $n=100$ の平均値を採用し、この平均値の1/3以下の値を示すものの割合

を絶縁破壊異常率とする。

#### (5) 蒸着加工性の評価

フィルム巾500mm、巻長さ20,000mの原フィルムに対してアルミニウム蒸着をアルミニウム純度99.99%、蒸着源温度1400℃、蒸着面とフィルム面との距離350mm、入射角40°、真空度 $5 \times 10^{-5}$  Torr、蒸着速度500mm/min、蒸着テンション：フィルム巾(500mm)に対しフィルム厚み4μのものは10kg、6μのものは15kg、12μのものは30kg、蒸着厚み100mmの条件で、原フィルムの温度を常温に保持して、アルミニウム蒸着を行ない、原フィルムの蒸着加工性について、蒸着加工を原フィルム20,000m巻のもの初本について行なつてもフィルムの破断破損の全く起らないものを◎とし、原フィルム30000m巻のもの1本についてフィルムの破損が1~2箇所起こるものを△、原フィルム20000m巻のもの1本についてフィルム破断破損破片が頻繁に起こり、使用に供し得ないものを

×とした。

#### (6) 素子端面不揃い、及び偏平化後の素子端面形状の評価

つぶれ荷重指数測定用に素子を巻取つたもの(30個)の端面の外観で評価した。

素子端面不揃いについては、端面が全て完全に揃っているものを◎とし、一部にやや不揃いのものもあるがその程度も小で、実用上何ら差支えないものを△、使用出来ないものを×とした。

偏平化後の素子端面形状評価は、フィルム層間が一直線で均一につぶれて隙間のないものを◎、一部に僅かの隙間が認められるが実用上何ら問題のないものを△、つぶれが不均一でフィルム層間に隙間ができて使用できないものを×とした。

#### 比較例1

ジメタルテレフタレートとエチレンジリコールを原料とし、エステル交換法として酢酸マ

ンガン 0.05 モル%, 重縮合触媒として三酸化アンチモン 0.02 モル%, 安定剤としてトリメタルホスフェート 0.03 モル% 添加してポリエチレンテレフタレートを製造した。

このポリエチレンテレフタレートを、常法に従つて溶融押出製膜し、縦方向に温度 90℃、倍率 3.6 倍で延伸し、横方向に温度 110℃、倍率 3.8 倍で延伸し、230℃で 15 秒間熱固定することにより、厚さ 12 μm と厚さ 6 μm のフィルムを製造した。

得られたフィルムの縦方向 P-5 値は厚さ 12 μm のフィルム 厚さ 6 μm のフィルム 共に P-5 値が 1.0 kg/cm<sup>2</sup> で、本発明のものにくらべ縦方向の強度が弱く、特性測定法即記載の高速、高テンションの厳しい蒸着加工条件では、しばしば破断破損、伸びが起こり、厚さ 12 μm のフィルムの場合、厚さ 6 μm のフィルムの場合共に X であった。

得られたフィルムの表面の突起については、厚さ 12 μm のフィルム、厚さ 6 μm のフィルム共に

特開昭53-64753(7) に 0.5 μm 以上の高さの突起 0 個/cm<sup>2</sup> と極めて表面は平らで滑り性は極めて悪かつた。従つてコンデンサー素子の巻取りも極めて難しく、また巻取られた素子のつぶれ荷重指数も、厚さ 12 μm のフィルムの場合 2.0 以上、厚さ 6 μm のフィルムの場合 8 以上、本発明のものにくらべ著しく大であつた。素子の端面不揃いは、厚さ 12 μm のフィルムの場合、厚さ 6 μm のフィルムの場合共に X、また素子の偏平化後の端面形状も、厚さ 12 μm のフィルムの場合、厚さ 6 μm のフィルムの場合共に X であつた。絶縁破壊電圧は、厚さ 12 μm のフィルムの場合 3.1 KV、厚さ 6 μm のフィルムの場合 1.5 KV、絶縁破壊異常率は、厚さ 12 μm のフィルムの場合も厚さ 6 μm のフィルムの場合も共に 0% であつた。

#### 比較例 2

エステル交換反応終了後、生成するポリエチレンテレフタレートに対して 0.1 重量% の割合のクレー (平均粒径 1 μm) をエチレングリコー

ル・スラリーの形で添加する以外は比較例 1 と同様にしてポリエチレンテレフタレートの製造し、このポリエチレンテレフタレートを常法に従つて溶融押出製膜し、縦方向に温度 75℃、倍率 3.8 倍で延伸し、横方向に温度 100℃倍率 3.7 倍で延伸し、215℃で 15 秒間熱固定して、厚さ 12 μm 及び 6 μm のフィルムを製造し、該フィルムを 20 mm 巾にスリットしたものを用いてコンデンサー素子を製造した。得られた結果は次の通りである。

表 1

厚	12 μm	6 μm
縦方向の P-5 値	1.2 kg/cm <sup>2</sup>	1.2 kg/cm <sup>2</sup>
高さ 0.5 μm 以上の突起	2900 個/cm <sup>2</sup>	2900 個/cm <sup>2</sup>
つぶれ荷重指数	1.2 kg	2.4 kg
蒸着加工性	△	△
素子端面の不揃い	X	○
素子偏平化後の端面形状	X	X
絶縁破壊電圧	3.1 KV	1.4 KV
絶縁破壊異常率	0%	0%

#### 実施例 1

ジメチルテレフタレートとエチレングリコールに、エステル交換触媒として酢酸リチウム 0.40 モル% 及び酢酸カルシウム 0.10 モル% を加えたエステル交換反応させた後、トリメタルホスフェート 0.16 モル%、三酸化アンチモン (重縮合触媒) 0.03 モル% 及びリン酸リチウム (生成ポリエステルに対して) 0.2 重量% 添加して、ポリエチレンテレフタレートを製造した。得られたポリエチレンテレフタレートを、常法に従つて溶融押出製膜し、縦方向に温度 65℃、倍率 4.3 倍で延伸し、横方向に温度 80℃、倍率 3.1 倍で延伸し、210℃で 15 秒間熱固定して厚さ 12 μm 及び 6 μm のフィルムとし、該フィルムを 20 mm 巾にスリットしたものを用いてコンデンサー素子を製造した。得られた結果は次の通りである。



に示す。なお、比較例 3 のものは高さ 0.5  $\mu$  以上の突起の数が少なすぎ、つぶれ荷重指数も大きすぎて、コンデンサー素子用には不適当である。

表 3

	実施例 2 (リン酸リチウム含有率 0.10%)		実施例 3 (リン酸リチウム含有率 0.03%)	
膜厚	1.2 $\mu$	4 $\mu$	1.2 $\mu$	6 $\mu$
膜方向の F-5 値	1.5 kg/cm <sup>2</sup>	1.5 kg/cm <sup>2</sup>	1.8 kg/cm <sup>2</sup>	1.8 kg/cm <sup>2</sup>
高さ 0.5 $\mu$ 以上の突起	23100 個/cm <sup>2</sup>	23100 個/cm <sup>2</sup>	6100 個/cm <sup>2</sup>	6100 個/cm <sup>2</sup>
つぶれ荷重指数	1.0 kg	0.4 kg	2.2 kg	0.7 kg
蒸着加工性	◎	◎	◎	◎
素子端面の不揃い	○	○	○	○
素子偏平化後の端面形状	◎	○	○	○
絶縁破壊電圧	3.0 KV	1.5 KV	3.1 KV	1.4 KV
絶縁破壊異常率	0%	0%	0%	0%

実施例 2 ～ 3 及び比較例 3

リン酸リチウムの添加割合を、実施例 1 の 0.2 重量% の代りに、0.08 重量% (実施例 2) 0.02 重量% (実施例 3)、あるいは 0.005 重量% (比較例 3) とする以外は実施例 1 と同様にして、ポリエチレンテレフタレート の製造、製膜、二軸延伸及び熱固定を行ない、厚さ 4 ～ 1.2  $\mu$  のフィルムを製造し、該フィルムを 20 mm にスリットしたものを用いてコンデンサー素子を製造した。得られた結果を表 3 及び表 4

	比較例 3 (リン酸リチウム含有率 0.005%)		
膜厚	1.2 $\mu$	6 $\mu$	4 $\mu$
膜方向の F-5 値	1.8 kg/cm <sup>2</sup>	1.8 kg/cm <sup>2</sup>	1.8 kg/cm <sup>2</sup>
高さ 0.5 $\mu$ 以上の突起	2900 個/cm <sup>2</sup>	2900 個/cm <sup>2</sup>	2900 個/cm <sup>2</sup>
つぶれ荷重指数	1.0 kg	1.5 kg	1.2 kg
蒸着加工性	◎	◎	◎
素子端面の不揃い	○	○	○
素子偏平化後の端面形状	×	×	×
絶縁破壊電圧	2.9 KV	1.6 KV	1.1 KV
絶縁破壊異常率	0%	0%	0%

実施例 4

エステル交換反応終了後、生成するポリエチレンテレフタレートに対して 0.3 重量% の割合の炭酸カルシウム (平均粒径 3  $\mu$ ) エチレンジリコール・スラリーの形で添加する以外は比較例 1 と同様にしてポリエチレンテレフタレート を製造し、このポリエチレンテレフタレート を常法に従って形蝕押出製膜し、膜方向に幅度

110 じ、倍率 1.8 倍で延伸し、横方向に幅度 90 じ 3.0 倍に延伸し、さらに膜方向に 140 じで 3.0 倍に延伸し、210 じで、1.5 秒間熱固定することにより、厚さ 1.2  $\mu$  のフィルムを製造し、該フィルムを 20 mm にスリットしたものを用いてコンデンサー素子を製造した。得られた結果は次の通りである。

表 5

膜厚	1.2 $\mu$
膜方向の F-5 値	2.2 kg/cm <sup>2</sup>
高さ 0.5 $\mu$ 以上の突起	34800 個/cm <sup>2</sup>
つぶれ荷重指数	0.7 kg
蒸着加工性	◎
素子端面の不揃い	◎
素子偏平化後の端面形状	◎
絶縁破壊電圧	3.3 KV
絶縁破壊異常率	1%

比較例 4

実施例 4 と同様にして製造したポリエチレン

テレフタレートを常法に従つて溶解押出製膜し、比較例1と同様にして二軸延伸、及び、熱固定を行ない、厚さ12μのフィルムを製造した。このものは、高さ0.5μ以上の突起の数も多く、つぶれ荷重指数も小さく、素子端面の不揃いもなく、また、偏平化後の素子端面の形状も良好であるが、縦方向のP-S値が低く、物性測定法即配線の高遮、高テンションでは蒸着加工時に破損、破損、伸びが顕著し、使用に耐えなかつた。

表 6

厚	12μ
縦方向のP-S値	10kg/cm <sup>2</sup>
高さ0.5μ以上の突起	39800個/cm <sup>2</sup>
つぶれ荷重指数	0.6kg
蒸着加工性	×
素子端面の不揃い	○
素子偏平化後の端面形状	○
絶縁破壊電圧	3.0KV
絶縁破壊異常率	3%

特開昭53-64753(9)  
以上の実施例より本発明のフィルムは、特にコンデンサー誘電体用として、固性、つぶれ性、蒸着加工性等の取扱作業性、電気的性質等にも優れていることが理解される。

#### 4. 図面の簡単な説明

図1は偏平化する前の素子の形状を示す図、図2は偏平化された素子で端面に空隙が認められる不良品の形状の一例を示す図、図3は偏平化された素子で端面に空隙のない良品の形状を示す図である。

特許出願人 帝人株式会社  
代理人 弁理士 前田 純 博

